

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平7-6911

(43) 公開日 平成7年(1995)1月10日

(51) Int.Cl.<sup>8</sup>

H 0 1 F 1/22  
41/02

識別記号

庁内整理番号

D 8019-5E

F I

H 0 1 F 1/ 22

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数12 O L (全 10 頁)

(21) 出願番号 特願平6-72285

(22) 出願日 平成6年(1994)4月11日

(31) 優先権主張番号 0 4 4 4 2 1

(32) 優先日 1993年4月9日

(33) 優先権主張国 米国 (US)

(71) 出願人 590001407

ゼネラル・モーターズ・コーポレーション  
GENERAL MOTORS CORP  
ORATION  
アメリカ合衆国ミシガン州48202, デトロ  
イト, ウェスト・ランド・ブルバード  
3044

(72) 発明者 デーヴィッド・アール・ゲイ

アメリカ合衆国インディアナ州46060, ノ  
ウブルスヴィル, イースト・ハンドレッド  
サーティファースト・ストリート 12310

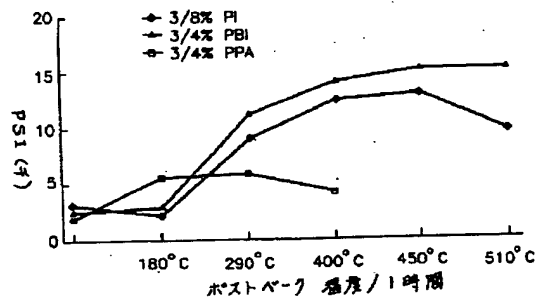
(74) 代理人 弁理士 湯浅 義三 (外6名)

(54) 【発明の名称】 凝集体から成る磁心

(57) 【要約】

【目的】 封入強磁性粒子から形成される磁性体の焼き  
なまし方法を提供する。

【構成】 磁性体の透磁率を高めるための圧縮成形磁性  
体の応力軽減方法を提供する。この方法は強磁性粒子  
を、ポリベンズイミダゾール又は、3-4' オキシジ  
アニリンとポリメチレンジアニリンとからの好ましいポリ  
イミドを含む、好ましいポリマーコーティング物質によ  
って封入することを含む。好ましいコーティング物質は被覆  
金属粒子から形成された磁性体を焼きなますために充分  
である期間、高温に耐えることができる。その結果、圧  
縮成形プロセスによって磁性体中に誘導される応力を、  
磁心の機械的性質及び磁気的特性に不利な影響を与えず  
に軽減することができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 各々がポリマーコーティング物質によって実質的に囲まれた、複数の被覆強磁性粒子から成る凝集体を含む圧縮成形磁心であって、該ポリマーコーティング物質がポリベンジイミダゾール及び、3, 4' オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導されたポリイミドから成る群から選択されること；該ポリマーコーティング物質が該凝集体の全体に比較して実質的に1重量%未満を成すこと；及び50エルステッド磁界強さと100~400Hzにおいて測定して少なくとも175 G/Oeの透磁率を有することを特徴とする磁心。

【請求項2】 該ポリマーコーティング物質がポリベンジイミダゾールであり、該凝集体の全体に比較して0.5~1重量%を成す請求項1記載の磁心。

【請求項3】 該ポリマーコーティング物質が3, 4' オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導されたポリイミドであり、該ポリマーコーティング物質が該凝集体の全体に比較して0.25~0.75重量%未満を成す請求項1記載の磁心。

【請求項4】 複数の強磁性粒子の各々上にポリマーコーティング物質の実質的に均一なカプセル封入層を付着させて、実質的に1重量%未満のポリマーコーティング物質を含み、5~400 $\mu$ mのサイズ範囲である、複数の強磁性粒子を形成する工程と；型キャビティ中で、複数の被覆粒子をポリマーコーティング物質と共に圧縮し、接着させるために充分な温度及び圧力において、複数の被覆粒子を圧縮して、磁性体を形成する工程とを含む広範囲な高温用途に適した磁性体の製造方法において、該ポリマーコーティング物質を少なくとも400℃の加熱たわみ温度を有するポリベンジイミダゾールとポリイミドとから成る群から選択することと、該ポリマーコーティング物質を有意に劣化又は熱分解することなく、該磁性体の透磁率を強化するように、圧縮工程によって生ずる応力を軽減するために充分である温度と期間において該磁性体を焼きなますことを特徴とする前記方法。

【請求項5】 ポリイミドが3, 4' オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導される請求項4記載の方法。

【請求項6】 該ポリマーコーティング物質がポリベンジイミダゾールであり、付着工程後の複数の被覆粒子の全体に比較して0.5~1重量%を成す請求項4記載の方法。

【請求項7】 該ポリマーコーティング物質がポリイミドであり、付着工程後の複数の被覆粒子の全体に比較して0.25~0.75重量%未満を成す請求項4記載の方法。

【請求項8】 該磁性体を室温から370℃までの範囲内の温度において圧縮成形する請求項4記載の方法。

【請求項9】 該ポリマーコーティング物質を流動床噴霧方法を用いて該強磁性粒子上に付着させる請求項4記載

の方法。

【請求項10】 該ポリマーコーティング物質がポリベンジイミダゾールであり、該磁性体を475℃~550℃の温度において焼きなます請求項4記載の方法。

【請求項11】 該ポリマーコーティング物質がポリイミドであり、該磁性体を425℃~500℃の温度において焼きなます請求項4記載の方法。

【請求項12】 該磁性体が50エルステッド磁界強さと100~400Hzにおいて測定して少なくとも175 G/Oeの透磁率を有する請求項4記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】本発明は一般に、請求項1の前文に記載したような被覆強磁性粒子からの成形体の透磁率を強化するための、請求項4の前文に記載した方法に関する。さらに詳しくは、本発明はポリマー物質で被覆した強磁性粒子から圧縮成形磁性体を形成し、次に、該磁性体が機械的性質の有意な低下を伴わずに強化された透磁率を有するように、ポリマーコーティング物質を有意に劣化させずに、圧縮成形中に該磁性体中に誘導される応力を実質的に軽減するために焼きなます方法に関する。

【0002】

【従来の技術】例えば変圧器、誘導子、モーター、発電機及び継電器用の軟質AC磁心のような磁石の形成のための粉末金属、特に鉄とその合金の使用は公知である。粉末金属を用いることの利点は、例えば圧縮成形、射出成形又はアイソスタチック(isostatic)プレス成形方法のような成形操作を用いて、付加的な機械加工及び/又は穿孔操作を必要とせず、例えば磁心のような、複雑な形状の成形部品を形成することができることである。その結果、成形部品はしばしば、成形プロセスによって形成されたまま、その使用環境内で実質的に使用可能である。

【0003】AC用途の成形磁心は一般に、低い鉄損(magnetic core loss)を有するべきである。低い鉄損を得るためには、磁心内の粒子が相互に電気的に絶縁されなければならない。成形のために必要な結合剤としても作用する、多くの種類の絶縁性物質が、例えば硫酸鉄とアルカリ金属ケイ酸塩のような無機物質並びに多様な有機ポリマー物質を含めて、先行技術によって示唆されている。粉末金属を無機下塗りコーティング(undercoating)によって被覆してから、有機仕上げ塗り(topcoat)を施すことも知られている。成形時に金属粒子間に充分な絶縁と接着とを与える他に、コーティング物質は粒子の流動性と圧縮可能性とを強化し、それによって成形製品が最大密度と強度を得ることが可能であるために、成形操作中に充分な潤滑(lubrication)を与える能力を有さなければならない。

【0004】金属粒子を共に接着させるために用いる絶縁性物質の耐熱性によって磁心の最大使用温度がしばしば

ば決定されることに、先行技術の欠点がしばしば起る。個々の金属粒子を相互から絶縁し、それによってAC用途向きの低い鉄損を与えるために、絶縁性物質の結合性を維持することが重要である。磁心がコーティング物質の分解温度を越える温度に暴露される場合には、コーティング物質が該粒子を封入して、接着させる可能性が低下して、結局は磁心を破壊することになる。磁心の物理的破壊が生じない場合にも、高温によるコーティング物質の絶縁能力の低下のために、磁心の磁界特性が重度に損なわれると思われる。

【0005】ポリベンズイミダゾール(PBI)、芳香族ポリアミド(例えばポリフタルアミド(PPA))及びある種のポリイミドが鉄粉末及び/又は鉄合金粉末のコーティング物質として良好に機能することが判明している。これらの好ましい物質の各々は約270℃を越える高温用途におけるそれらの使用を可能にする、それらの加熱たわみ温度によって限定される使用温度を有する。その結果、これらの好ましいポリマーは、成形磁心の機械的性質及び好ましい磁氣的性質が高温において劣化しないような、特に比較的高い使用温度に耐えるそれらの可能性に関して、良好に機能する。

【0006】ポリベンズイミダゾール、芳香族ポリアミド(例えばポリフタルアミド)及び好ましいポリイミドは下方の鉄粒子に良好に接着し、鉄粒子を共に結合させ、熱及び化学的作用(attack)に耐える可能性を有し、しかも圧縮成形プロセス中に潤滑剤として、磁心の高い密度と強度を増進させるようにも役立つ。成形プロセス中に封入用物質が潤滑剤としても役立つ可能性は、不適当に低い密度が磁心の透磁率の低下に対応する点からも重要である。

【0007】しかし、圧縮成形磁心に付随する欠点は、圧縮成形プロセス中に透磁率の低下とおそらく高い鉄損をも生ずる磁心内の応力を含めた、加工硬度が生ずることである。1例として、通常の圧縮成形方法によって形成された磁心の透磁率は典型的に約50エルステッド磁界強さと約100~400Hzとにおいて約125 Gauss/エルステッド(G/Oe)を越えることはない。その結果、封入(encapsulated)鉄粒子から圧縮成形された磁心は一般に、約50エルステッド磁界強さと約100~400Hzとにおいて測定して約175 G/Oeを越える透磁率を必要とする、例えば発電機、固定子鉄芯、変圧器等のような、AC用途に有用であるために十分に高い透磁率を有さない。

【0008】圧縮成形中に誘導される好ましくない応力を軽減するために、磁心を少なくとも約450℃の温度において焼きなまし、次にこの磁心を急冷せずに冷却することが必要である。しかし、ポリマーコーティングは一般に、このような温度に耐えることができず、分解し、熱分解して、磁心における強度と磁氣的性質との有意な低下を生ずる傾向がある。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】従って、封入金属粉末から形成される圧縮成形磁心の透磁率を強化する方法であって、コーティング物質が圧縮成形プロセスによって誘導される応力を軽減するように磁心を焼きなますために充分である処理温度に耐える可能性を有する方法を提供することが望ましい。さらに、このような方法が焼きなまし中のコーティング物質の分解及び/又は熱分解の結果として成形磁心の機械的性質と磁氣的特性との対応する低下を生じないことが望ましい。さらに、このようなコーティング物質は適当な溶剤に可溶であるべきであり、成形されたままの成形体の最大密度と強度とを得るために、成形プロセス中の潤滑を改良し、成形後の金属粒子間に接着させることができるべきである。

【0010】本発明による広範囲な高温用途に適した磁性粒子の成形方法は、請求項4記載の特徴描写部分に記載された特色(feature)を特徴とする。本発明による圧縮成形磁心は請求項1の特徴描写部分に記載された特色を特徴とする。

【0011】封入粉末金属から成形される圧縮成形磁心の透磁率を強化する方法を提供することが、本発明の目的である。

【0012】このような方法が粉末金属粒子を封入するためのコーティング物質の使用を含み、圧縮成形プロセスによって磁心中に誘導される応力が、焼きなまし中のコーティング物質の分解及び/又は熱分解の結果としての磁心の機械的性質と磁氣的特性とを有意に劣化させることなく、軽減されることができるよう、このコーティング物質が封入金属粒子から圧縮された磁心を焼きなますために充分である温度に耐えることができることが、本発明の他の目的である。

【0013】成形プロセス後の磁心の直接の取り扱いと使用を可能にするためにコーティング物質が金属粒子を共に強度に接着させることができ、かつ磁心中の低い鉄損を助成するために金属粒子が相互から充分に絶縁されるように、このようなコーティング物質が高い強度と絶縁性とを有することが、本発明のさらに他の目的である。

【0014】金属粒子の圧縮成形を促進し、それによって得られる磁心の密度を最適化するために、このようなコーティング物質が高い圧縮可能性を有することも、本発明のさらに他の目的である。

【0015】最後に、このようなコーティング物質が例えば流動床プロセスのような方法を用いて金属粒子上に付着されることができ、本発明のさらに他の目的である。

【0016】

【課題を解決するための手段】本発明の好ましい実施態様によると、上記その他の目的と利点は下記のように達成される。

【0017】本発明によると、封入粉末金属から成形さ

れる圧縮成形磁心の透磁率を強化する方法であって、磁心を焼きなますために充分である温度に耐えることができる、例えば鉄及び鉄合金のような粉末金属を封入する、すなわち被覆するためのコーティング物質の使用を含む方法を提供する。その結果、圧縮成形プロセスによって誘導される応力を、焼きなまし中にコーティング物質の分解の結果として磁心の機械的性質及び磁気的特性を実質的に低下させることなく、軽減させることができる。

【0018】必要な焼きなまし温度に最大に耐えることができると判明しているコーティング物質は、少なくとも約400℃の加熱たわみ温度を有する、ポリベンズイミダゾール(PBI)と特定のポリイミド(PI)である。

【0019】これらの好ましいコーティング物質によって封入された金属粒子から圧縮成形された磁性体は圧縮プロセスによって誘導される加工硬化応力を軽減するために充分である期間、一般に約450℃を越える温度に耐えることができることが判明している。これらの応力の除去が磁性体の透磁率を強化すると考えられる。本発明によると、好ましいコーティング物質はこれらの焼きなまし温度において有意に劣化又は熱分解しないため、磁心の機械的強度(例えば強度)及び/又は磁気的性質(例えば透磁率)の低下を軽減する。

【0020】好ましいコーティング物質の各々は約400℃を越える加熱たわみ温度を有するので、好ましいコーティング物質のいずれかによって被覆された金属粒子から成形された磁性体は比較的高い使用温度における用途に特に適する。詳しくは、これらのコーティング物質は、磁心が特定の使用コーティング物質の少なくとも対応加熱たわみ温度までの使用温度においてその機械的及び磁気的性質を維持することを可能にする。

【0021】好ましいコーティング物質はまた、充分に可溶性であり、化学的作用に対して高度に耐性であり、比較的高い強度と良好な誘電性とを有する。その結果、コーティング物質は流動床プロセスのような塗布されることができ、比較的高温の環境内で高い強度と絶縁性とを必要とする用途への使用に適する。このコーティング物質は圧縮成形プロセスを用いて成形体を形成するために金属粒子と共に強度に接着させることができる。さらに、コーティング物質の絶縁効果によって生ずる鉄損は適当に低く、磁心の好ましい磁気的特性を保証する。最後に、このコーティング物質は圧縮成形プロセス中の圧縮と緻密化を助成するために充分に潤滑性である。上記性能は被覆金属粒子から圧縮成形される磁心の製造に特に有利である。

【0022】好ましいコーティング物質は比較的少量で、すなわち封入金属粒子の塊に比較して約1重量%未満で存在しながら、上記利点を示すことができる。被覆金属粒子を例えば圧縮成形若しくは射出成形機又はアイソスタチックプレスのような、適当な成形装置中に導入し、

加熱された型キャビティ中で被覆金属粒子を適当な高圧下で圧縮して、被覆金属粒子を緻密化して、緻密で、強い固体磁性体を製造する。

【0023】この磁性体を成形プロセスによって誘導される加工硬化を軽減するために充分である温度及び期間において焼きなましして、磁性体の透磁率を助成し、次に好ましくは、熱誘導応力の生成を避けるために十分に緩慢な速度で冷却させる。好ましいコーティング物質は焼きなましプロセスに耐えることができるので、コーティング物質の有意な劣化又は熱分解が生じない。従って、好ましいコーティング物質の不利な変化の結果としての磁性体の強度又はAC磁気的性質の有意な低下が生じない。従って、本発明の好ましいコーティング物質によって封入された金属粒子から圧縮成形される磁心は、約50エルステッド磁界強さと100~400Hzにおいて測定して約175G/Oeを越えるような透磁率を必要とする、例えば発電機、固定子鉄芯、変圧器等のような、AC用途に有用であるために充分に高い透磁率を有する。

【0024】本発明の他の目的及び利点は、添付図面に関連した下記の詳細な説明から良好に理解されるであろう。

【0025】図1と2は本発明によって形成した磁性体の機械的性質に対して種々な焼きなまし温度が及ぼす影響を説明するグラフであり；図3は本発明によって形成した磁性体の透磁率に対して焼きなまし温度が及ぼす影響を説明するグラフである。

【0026】ここに記載する範囲が、技術上周知であるように、達成が望まれる結果に有意に影響を与えずに、或る場合に引用される限界をやや超えて拡大可能であることが理解される。

【0027】本発明の方法は粉末物質を被覆するために、さらに詳しくは、例えば、自動車業界で用いられるAC磁心としての使用に特に適した磁石を形成するように、粉末鉄及び強磁性鉄合金を封入するためにポリマーコーティング物質の或るグループの使用を含む。好ましいポリマーコーティング物質は、磁心の透磁率の助成を生ずるための、成形プロセス中に誘導される応力を軽減する目的での磁心の焼きなましに充分である高温に耐えることができる。他の種類の製品の成形も本発明の請求の範囲内であることに注意すべきである。

【0028】本発明によると、好ましいポリマーコーティング物質は少なくとも約400℃の加熱たわみ温度を有する、ポリベンズイミダゾール(PBI)とポリイミド(PI)である。このようなポリイミドは3-4'オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導されるものを含む。ポリベンズイミダゾールはヘキストセラニーズコーポレーション(Hoechst Celanese Corporation)(米国)から商品名セラゾール(Celazole)U-60で入手可能である。3-4'オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導されるポリイミドは、商品

7  
名イミテック201Aでイミテック(Imitech)(米国)から入手可能である。これらは本発明の好ましいポリマーコーティング物質であるが、適当な高さの加熱たわみ温度を有する他のポリマーも使用可能であると予想されることに注意すべきである。さらに、熱硬化性ポリマーも使用可能であると考えられるが、適当な高温エポキシ樹脂が必要である。

【0029】好ましいコーティング物質の各々は、ポリマー物質のシートを3点で支えて、たわみをポリマー物質の温度上昇の関数として測定する、“曲げ負荷下のプラスチックのたわみ温度”なるタイトルのASTM試験D-648による標準化加熱たわみ温度によって一般的に測定して、少なくとも約400℃を越える温度範囲にわたって優れた機械的性質と誘電特性とを特徴とする。

【0030】ポリベンズイミダゾールは約435℃の加熱たわみ温度を有し、3-4'オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導される好ましいポリイミドは少なくとも約400℃の加熱たわみ温度を有する。これらの物質が高い焼きなまし温度においてそれらの結合性を維持せずに、封入粒子の塊から形成される成形体の結合性の分解を惹起することが最初に考えられた。また、好ましいポリベンズイミダゾールによって被覆された強磁性金属粒子から形成された成形体が少なくとも約500℃の焼きなまし温度に1時間耐えて、このような磁心の成形プロセス中に誘導される応力を軽減するための焼きなましを可能にすることが判明した。さらに、例えば3-4'オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導されるポリイミドのような、好ましいポリイミドによって被覆された強磁性粒子から形成された成形体も少なくとも約450℃の焼きなまし温度に1時間耐えることが可能である。これらの比較的高温においても、磁心の物理的性質と誘電的性質の結合性が維持されて、例えば鉄損によって測定されるような、成形体の磁氣的性質の劣化を、たとえあるとしても、殆ど生じない。

【0031】さらに、好ましいコーティング物質はそれぞれ適当な溶剤に可溶であるので、上述した、技術上知られた、好ましいウルスター(Wurster)型流動塗布プロセスでのそれらの使用が可能である。詳しくは、ポリベンズイミダゾールは塩化リチウムと共に1-メチル-2-ピロリドン中に可溶であり、好ましいポリイミドは一般にN-メチル-2-ピロリドンに可溶であるが、他の適当な溶剤が存在し、使用可能であることが予想される。しかし、本発明の好ましいコーティング物質はそれらの上記溶剤以外の溶液中に不溶性である傾向があり、これが例えば自動車のエンジン要素の環境のような、たいいていの環境内での化学作用に対してそれらを実質的に不感受性(impervious)にしている。

【0032】ポリベンズイミダゾールと好ましいポリイミドの両方が少なくとも1種の溶剤中に溶解性であるこ

とは、本発明によって用いられる、好ましい塗布及び成形プロセスの見地から有利である。好ましいコーティング物質、特にポリベンズイミダゾールがコーティング物質を溶剤中に最初に溶解することを必要としないスラリー塗布プロセスで使用可能であることが予想されるが、粉末物質上により均一な被膜を得て、それによって低い鉄損を助成するために、好ましいポリマーが溶液状態である流動化塗布プロセスを用いることが一般に好ましい。

【0033】本発明によると、好ましいコーティング物質によって封入された強磁性粒子から形成される磁性体が、磁性体の透磁率を強化するために、少なくとも450℃の焼きなまし温度に成形プロセスによって誘導される応力を軽減するために充分な期間、耐えることができる。焼きなまし後に、成形後の磁心の好ましい強度と形状を維持するために、好ましいコーティング物質の機械的及び磁氣的性質は隣接金属粒子の間に充分に接着させるために保有される。さらに、好ましいコーティング物質の絶縁能力は充分に維持されて、成形体の鉄損を最小にする。

【0034】好ましいコーティング物質のいずれかによって被覆された強磁性金属粒子に対して使用可能な温度は、約375℃を越え、従って、高温用途におけるそれらの広範囲な使用が可能である。これに応じて、これらの高温領域における成形体の鉄損特性(magnetic core loss property)も維持される。

【0035】好ましいコーティング物質は望ましい流動及び供給(feed)性をも有し、圧縮可能かつ緻密であり、これがこれらの物質を圧縮成形プロセスへの使用に非常に適したものにしている。その結果、好ましいコーティング物質は通常の分配装置によって容易に取り扱い可能である。さらに、最大金属粒子密度は圧縮成形プロセスによって得ることができる。

【0036】好ましいコーティング物質の各々は封入金属粒子の総重量に比較して、約1重量%未満の量で存在しながら、上記利点を達成することができる。最も好ましくは、ポリベンズイミダゾールは約0.5~約1重量%の範囲内で存在し、好ましいポリイミドは約0.25~約0.75重量%の範囲内で存在する。これより多量の好ましいコーティング物質が使用可能であることも予想されるが、この場合には成形体の物理的性質の対応する変化及び/又は透磁率の低下が生ずる可能性がある。

【0037】成形体の残部、約99重量%は、以下で詳述するように高い透磁率の磁心を得るために、好ましくは約5~約400μm、より好ましくは約25~約350μmの範囲内の範囲内の大きさの強磁性粒子から成る。

【0038】強磁性金属粒子を被覆する好ましい方法は当業者に公知の種類のウルスター型噴霧塗装流動床を用いるが、粒子上に均一な被膜を生ずる他の方法も使用可能である。この流動床は本質的に、一方が他方の内部に

9  
入る、同心対の直立円筒形容器を含む。外側容器は外側容器のみの床を形成するように閉じた、その軸方向下端部を有し、内側容器はこの床の上方に懸垂される。床は種々な大きさの開孔を有し、これを通して、加熱された空気を両方の容器に引き入れる。開孔は、空気流の大部分が内側容器を通して上昇し、次に内側容器と外側容器との間を通して下降するような、大きさ及び配置である。流動床を導入する前に、必要ではないとしても、被覆プロセス中に金属粒子上に実質的に均一な被膜厚さを助成するために、金属粒子をサイズによって予め選別す

【0039】開始時に、粉末金属のバッチを容器の底に入れ、粒子を流動化するために充分な速度で熱風を循環させる。バッチサイズと粒度とに応じて、空気の流速は一般に約 $100\text{ m}^3/\text{時}$ ～約 $200\text{ m}^3/\text{時}$ の範囲内である。また、空気の温度は被覆プロセスの開始時には約 $55\sim 80^\circ\text{C}$ の範囲内であるが、被覆プロセス中に溶媒の導入と蒸発とによって変化する。空気温度が低すぎると、金属粒子の接触時に溶媒が蒸発せず、そのため充分な被覆粒子が生じ、空気温度が高すぎると、溶媒が迅速に蒸発しすぎて、粒子上の均一な厚さの被膜の形成が妨げられる。被覆プロセスが進行するにつれて、各粒子は異常に多数回ランダムに被覆されて、粒子上に均一な厚さの被膜が保証される。

【0040】内側室の下方の床に配置された噴霧ノズルは、適当な溶剤に溶解した、好ましいコーティング物質の1種を室中に供給するのに役立つ。被覆操作の効率を最大にするために、溶液は好ましくは約 $5\sim 15$ 重量%のコーティング物質を含み、より好ましくは約 $10$ 重量%のコーティング物質を含むが、極度に大きい範囲の溶液によって適当な被覆結果を得ることができる。

【0041】次に、溶液を流動床中に噴霧する。流動床内では、溶媒が蒸発して、粒子上に付着したコーティング物質が残される。ひと度付着されたならば、封入金属粒子は熱風的作用によって内側容器と外側容器とによって画定される限定容積の間を再循環する。各金属粒子が、好ましくは本発明のコーティング物質の各々について上述したそれぞれの重量%に応じて、特定の使用コーティング物質の均一で、充分な厚さの被膜を得るまで、循環が続けられる。典型的に被膜厚さは約 $5\sim 400\text{ }\mu\text{m}$ の好ましい範囲内の金属粒子に対して約 $0.3\sim 4.5\text{ }\mu\text{m}$ の範囲内である。

【0042】上述したように、各粒子上に実質的に均一な被膜が得られる限り、他の付着方法も使用可能である。

【0043】その後、被覆金属粒子を適当な成形装置中に導入することができる。例えば、磁心の形成に用いられる典型的な成形プロセスは、圧縮成形、射出成形及びアイソスタチックプレス成形を含み、一般に約室温から約 $370^\circ\text{C}$ まで、より好ましくは約 $260^\circ\text{C}\sim 37$

$0^\circ\text{C}$ の範囲内の成形温度において実施され、粒子は約 $150\sim 175^\circ\text{C}$ に予熱される。これらの温度において、好ましいコーティング物質は充分に流体であり、成形操作中の圧力下で流動するが、金属粒子に接着し、隣接金属粒子の間に潤滑作用を与えるほどに粘稠である。

【0044】その結果、自動化取り扱い装置を用いて、被覆金属粒子を被覆及び成形プロセスを通して加工及び供給して、サイクル時間を短縮することができる。さらに、これらのプロセスによって形成される、例えば磁心のような、圧縮成形体は成形されたままの成形体の直接の取り扱いと使用を一般に可能にし、必要に応じて成形体の機械加工を可能にするように、物理的に強く、緻密であることを特徴とする。

【0045】金属粒子と型キャビティとを予熱するために、被覆金属粒子は型キャビティ中へ容易に流入し、 $308.886\sim 772.215\text{ MPa}$  [約 $20\sim 50$ トン/平方インチ (tsi)] の典型的な成形圧力を受けた場合に、充分に流動して、緻密化されて、例えばその密度が約 $7.0\text{ g/cm}^3$ より大きいことが好ましい強磁性コアのような成形体を形成する。上記被覆及び成形プロセスを広範囲に変化させて、技術上公知であるように、成形体の物理的及び磁気的性質を変化させることができる。

【0046】次に、成形プロセス中に誘導された加工硬化応力を軽減するために、成形体を焼きなます。本発明の焼きなましプロセスの好ましい温度範囲は選択した特定コーティング物質に一部依存する。一般に、本発明のコーティング物質には約 $425\sim 550^\circ\text{C}$ の焼きなまし温度が好ましく、ポリベンズイミダゾールによって形成された成形体に対しては約 $475\sim 550^\circ\text{C}$ がより好ましい範囲であり、好ましいポリイミドによって形成された成形体に対しては約 $425\sim 500^\circ\text{C}$ がより好ましい範囲である。焼きなましプロセスの期間は典型的なAC用途に対しては好ましくは約 $0.5\sim 2$ 時間である。大抵の用途に対しては約 $1$ 時間の期間が充分であるように思われるが、特定の成形体に対する最適期間は成形体の大きさ及び形状に非常に依存する。従って、状況によっては $0.5$ 時間未満又は $2$ 時間を超える焼きなまし期間が好ましいこともあると考えられる。

【0047】焼きなまし後に、成形体を急冷せずに、好ましくは成形体中の熱誘導応力の形成を避けるために十分に緩慢な速度で、冷却させる。適切な方法は焼きなまし炉がその加熱サイクルから冷却するときの炉内の自然の対流によって成形体を冷却させることである。

【0048】本発明によって被覆した強磁性粒子から形成される磁性体の好ましい焼きなまし温度を決定するために、強磁性体粒子の個別の量を上記流動床プロセスに従って、好ましいコーティング物質のいずれかによって選択的に被覆した。強磁性粒子は一般に約 $5\sim 300\text{ }\mu\text{m}$ の粒度を有し、これらの粒子をポリベンズイミダゾー

セル(ヘキスト セラニーズ コーポレーションからのセラローズU-60)又は好ましいポリイミド(イミテックからのイミテック201A)によって被覆した。ポリベンズイミダゾールによって封入した粒子に対しては、コーティング物質を被覆強磁性粒子の量の約0.75重量%になる量を生ずるために充分な厚さに付着させ、ポリイミドによって封入した粒子は、ポリイミドが被覆粒子の量の約0.375重量%になるために充分な厚さに被覆した。これらの特定の重量%は各ポリマー被膜に対して最適であるように算出したものである。

【0049】比較のために、強磁性粒子をアモコ パーフォーマンス プロダクツ社(Amoco Performance Products, Inc.) (米国) から商品名アモデル(Amodel) AD-1000で得られるポリフタルアミドによっても被覆した。ポリフタルアミドは高温用途に適した成形磁性体の形成用の好ましいコーティングとして開示されている。このポリフタルアミドを被覆強磁性体の約0.75重量%を成すように付着させた。

【0050】次に、特定コーティング物質の各々の横方向破断バーを成形圧力772.215MPa(約50t/si)における室温圧縮成形によって形成した。この横方向破断バーは長さ約31.75mm(1.25インチ)、幅12.7mm(0.5インチ)、厚さ9.52mm

\* 5mm(0.375インチ)であった。ポリイミド被覆横方向破断バーは約7.4g/cm<sup>3</sup>の密度を有し、ポリベンズイミダゾール被覆横方向破断バーは約7.5g/cm<sup>3</sup>の密度を有した。

【0051】形成後に、各コーティング物質の試験バーを約180℃、290℃、400℃、450℃及び510℃の温度において選択的に焼きなまし、各コーティング物質の1サンプルは比較のために焼きなましせずに残した。サンプルの焼きなまし時間は約1時間であった。次に強度試験を実施して、0.2%オフセット(offset)時の荷重と試験バー破断時の荷重とを“金属粉末焼結試験片の横方向破断強度”なるタイトルのASTM試験B528-83Aに従って測定した。

【0052】引張り試験の結果を以下の表Iと、図1と2に示す。表Iと、図1と2において、“PI”はポリイミド被覆横方向破断バーに対応する結果を表すために用い、“PBI”はポリベンズイミダゾール被覆横方向破断バーに対応する結果を表すために用い、“PPA”はポリフタルアミド被覆横方向破断バーに対応する結果を表すために用いる。記載すべきデータの欠損は、コーティング物質が試験が不能である程度に分解したことを意味する。

【0053】

表I

ポストベークせず	PPA	PI	PBI
最大破断荷重MPa(psi)	12.79(1855)	20.42(2962)	15.93(2310)
0.2%オフセット荷重MPa(psi)	10.63(1542)	20.15(2923)	15.04(2181)
180℃焼きなまし			
最大破断荷重MPa(psi)	38.18(5537)	15.57(2258)	20.07(2911)
0.2%オフセット荷重MPa(psi)	36.71(5325)	15.44(2240)	18.96(2750)
290℃焼きなまし			
最大破断荷重MPa(psi)	41.12(5964)	63.52(9213)	70.70(11270)
0.2%オフセット荷重MPa(psi)	39.44(5721)	45.11(6542)	52.54(7621)
400℃焼きなまし			
最大破断荷重MPa(psi)	29.49(4277)	86.81(12590)	98.04(14220)
0.2%オフセット荷重MPa(psi)	23.12(3353)	53.08(7698)	59.58(8642)
450℃焼きなまし			
最大破断荷重MPa(psi)	--	90.98(13170)	105.90(15360)
0.2%オフセット荷重MPa(psi)	--	51.89(7526)	67.49(9788)
510℃焼きなまし			
最大破断荷重MPa(psi)	--	68.48(9932)	106.18(15400)
0.2%オフセット荷重MPa(psi)	--	46.55(6751)	67.09(9730)

上記データは、本発明の好ましいコーティング物質が特定温度における焼きなまし後に適切な強度を有することを説明する。実際に、試験バーは焼きなまし温度を高めた時により重い破断荷重を必要とし、ポリベンズイミダゾール(PBI)は510℃まで(510℃を含める)の高温において破断のために最も重い荷重を必要とした。コーティング物質として好ましいポリイミドを用いた試験片は約510℃において機械的性質の若干の劣化を示

し、このことはより最適な焼きなまし温度が約450℃に近いことを実証した。これとは対照的に、コーティング物質としてポリフタルアミドを用いた試験片は約180℃を越える焼きなまし温度において最低の機械的性質を示し、熱分解がこれらの試験片を劣化させすぎて、約400℃を越える焼きなまし温度においてもはや試験することができなかった。

【0054】ポリベンズイミダゾール物質及び、3-

4' オキシジアニリンとポリメチレンジアニリンとから誘導された好ましいポリイミドが、それらのそれぞれの好ましい焼きなまし温度において、成形体内に存在する応力を軽減するほどに充分に軟化し、好ましいポリイミドも恐らく比較的高温においてイミド化し(imidize)、それによってより強度な、応力を含まない成形体を生ずると考えられる。

【0055】機械的強度のデータを用いて、ポリマー分解度を示した。結果は、これらの強磁性体を少なくとも約450℃までの温度において焼きなました後に、機械的性質が強化されたことを示す。好ましいコーティング物質から形成した磁性体の磁気的特性に焼きなまし及びぼす効果を評価するために、コーティング物質としてポリベンズイミダゾールを用いて、約772.215MPa (50tsi) の成形圧力による約290℃での圧縮成形によってドーナツ型試験サンプルを形成した。このドーナツ型試験サンプルは約50.8mm (2インチ) の外径、約43.18mm (1.7インチ) の内径及び約6.35mm (0.25インチ) の横断厚さを有した。このドーナツ型サンプルを種々な温度において約1時間焼きなました。付加的サンプルは比較のために焼きなまされなかった。ポリベンズイミダゾールが被覆強磁性粒子の約0.75重量%を成すように、ポリベンズイミダゾール被膜を付着させた。

【0056】次に、サンプルを試験して、100Hz～400HzのAC電流に暴露させた場合の透磁率( $\mu$ )を測定した。450℃又は510℃において焼きなましたサンプルによって最良の試験結果が得られ、これらのサンプルのデータは図3に示す。これらのサンプルから得られたデータは、焼きなまされなかったサンプルに比べて、焼きなましたサンプルでは透磁率の実質的な増加が生じたことを実証した。このような結果は、圧縮成形プロセスが成形体を加工硬化させて、その透磁率を対応して低下させるという見解に一致する。試験サンプルを焼

\* きなますことによって、図3の結果が示すように、加工硬化に由来する応力は軽減されて、透磁率を上昇させた。本発明の好ましいコーティング物質によって封入された強磁性粒子から形成された特定の磁性体に関して、要求の厳しいAC用途に磁性体が使用可能であるように、本発明の焼きなまし方法が50エルステッド磁界強さと100～400Hzにおいて測定して約210G/Oeより大きく透磁率を容易に高めることができることが予想される。

10 【0057】好ましいコーティング物質から形成した磁性体の磁気的特性をさらに評価するために、各好ましいコーティング物質のドーナツ型試験サンプルを上記圧縮成形方法によって再び形成した。ポリベンズイミダゾールをそのそれぞれの被覆粒子の約0.75重量%を成すように付着させ、好ましいポリイミドをそのそれぞれの被覆粒子の約0.375重量%を成すように付着させた。ポリイミド被覆サンプルは約7.4g/cm<sup>3</sup>の密度を有し、ポリベンズイミダゾール被覆サンプルは約7.5g/cm<sup>3</sup>の密度を有した。

20 【0058】各好ましいコーティング物質のサンプルを次に、上記機械的試験で得られた最良の結果に従って、焼きなました。ポリベンズイミダゾールによって封入された強磁性粒子から形成したサンプルは約510℃において約1時間焼きなました。好ましいポリイミドによって封入された強磁性粒子から形成したサンプルは約450℃において約1時間焼きなました。

30 【0059】次に、サンプルを試験して、DC電流、100Hz AC電流及び400Hz AC電流に暴露させた時の、エルステッドでの磁界強さ(H<sub>max</sub>)、ガウスでの磁束密度(B<sub>max</sub>)、ワット/ポンドでの総鉄損(P<sub>cm</sub>)及び透磁率( $\mu$ )を測定した。これらの試験結果は以下の表11に示す。この表において、各コーティング物質は前記表1と同様に確認される。

【0060】

表11

DC電流	P I	P B I
H <sub>max</sub> (Oe)	160	159
B <sub>max</sub> (G)	16,000	16,800
透磁率( $\mu$ )	100	106
周波数=100Hz		
H <sub>max</sub> (Oe)	59.1	75.9
B <sub>max</sub> (G)	12,520	15,100
透磁率( $\mu$ )	212	198
鉄損(W/lb)	23.0	39.8
周波数=400Hz		
H <sub>max</sub> (Oe)	58.9	78.6
B <sub>max</sub> (G)	12,520	15,100
透磁率( $\mu$ )	213	192
鉄損(W/lb)	120	326

上記データは、図3に示した結果と共に、サンプルの焼 50 きなましによって強化された透磁率を有する有用な磁心

体が得られることを実証する。ポリイミド (PI) サンプルはポリベンジイミダゾール (PBI) サンプルよりも低い鉄損を示したが、個々の強磁性粒子により均一な被膜を得ることによって、又はより低い成形圧力を用いることによってポリベンジイミダゾール (PBI) よりも改良がなされたと考えられる。低い鉄損を有するポリイミドサンプルに対する可能な説明として、好ましいポリイミドが成形中に部分的にイミド化し、焼きなまし中にほぼ完全にイミド化することが考えられる。

【0061】上記から、本発明の有意な利点が、被覆金属粒子から圧縮成形された磁心を焼きなますために十分な温度に耐えることができる粉末金属封入用のポリマーコーティング群を提供することであることは、当業者に明らかであろう。この結果、圧縮成形プロセス中に磁心の加工硬化によって誘導される応力は、焼きなまし中のコーティング物質の分解及び／又は熱分解の結果として磁心の機械的性質を有意に低下させずに、軽減されることができる。さらに、本発明による好ましいコーティング物質を用いて磁気的性質の有意な改良、さらに詳しくは透磁率の改良が達成されることは明らかである。この結果、本発明によって製造される磁心は、50エルステッド境界強さと100～400Hzにおいて測定して約175 G/Oeを越えるような透磁率を必要とする発電機、固定子鉄芯、変圧器等のようなAC用途に有用であるように、約210 G/Oeのオーダーの有意に高い透磁率を有することができる。

【0062】好ましいコーティング物質の温度容量 (temperature capability) も、熱的にホスチルな (thermally-hostile) 環境で使用される磁心にとって有利である。好ましいコーティング物質は金属粒子と共に強度に接着させる結果としての強度と密度を含めた機械的性質を磁心\*

に与える。

【0063】さらに、好ましいコーティング物質の耐高温性は金属粒子を相互から電気的に絶縁させる可能性を含み、多くの用途に受容される鉄損 (AC用途の重要な磁気的特性) を生ずることができる。好ましいコーティング物質は広範囲な化学物質に対して高度に耐性であり、これはこれらの磁心を例えば自動車のエンジンコンパートメントのような化学的にホスチルな (chemically-hostile) 環境での使用に適したものににする。さらに、このようなコーティング物質は典型的な成形温度において高密度の成形材料の形成を可能にするほど、十分に潤滑性である。

【0064】本発明をその好ましい実施態様に関して説明したが、例えば少なくとも約400°Cの加熱たわみ温度を有する他の熱可塑性ポリマーを用いることによって、又は例えば使用温度と圧力のような加工パラメータを変更することによって、又は例えば他の磁性もしくは磁化可能な物質のような他の適当な粉末物質を用いることによって、又は代替え用途に用いるための特定の物質及び方法を用いることによって、他の形式を当業者が採用できることは明らかである。従って、本発明の範囲は特許請求の範囲によってのみ限定されるものである。

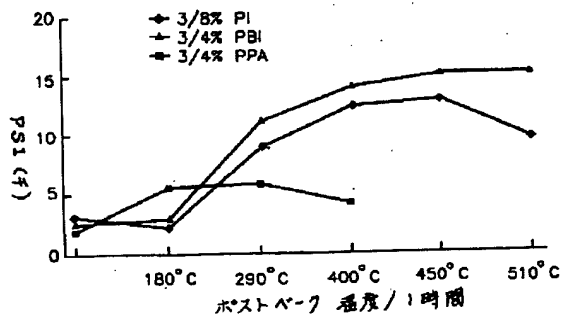
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明によって形成した磁性体の機械的性質に対して種々な焼きなまし温度が及ぼす影響を説明するグラフ。

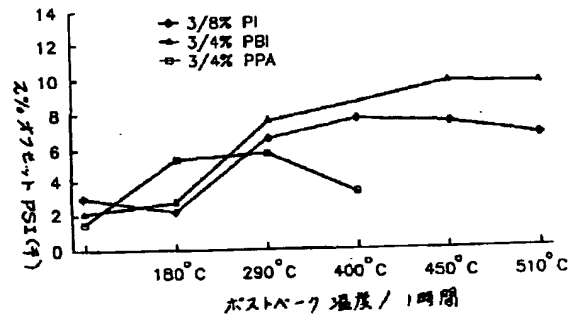
【図2】本発明によって形成した磁性体の機械的性質に対して種々な焼きなまし温度が及ぼす影響を説明するグラフ。

【図3】本発明によって形成した磁性体の透磁率に対して焼きなまし温度が及ぼす影響を説明するグラフ。

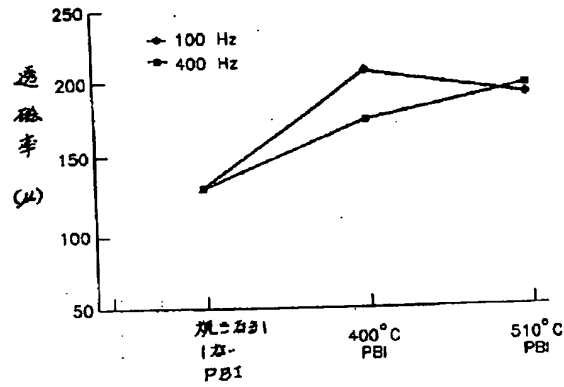
【図1】



【図2】



【図3】



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**